

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/KR05/001410

International filing date: 13 May 2005 (13.05.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: KR  
Number: 10-2004-0033791  
Filing date: 13 May 2004 (13.05.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 30 June 2005 (30.06.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse



별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto  
is a true copy from the records of the Korean Intellectual  
Property Office

출 원 번 호 : 특허출원 2004년 제 0033791 호  
Application Number 10-2004-0033791

출 원 일 자 : 2004년 05월 13일  
Date of Application MAY 13, 2004

출 원 인 : 주식회사 엘지화학  
Applicant(s) LG CHEM. LTD.

2005 년 06 월 09 일

특 허 청  
COMMISSIONER



**【서지사항】**

**【서류명】** 특허출원서  
**【권리구분】** 특허  
**【수신처】** 특허청장  
**【제출일자】** 2004.05.13  
**【발명의 국문명칭】** 연료전지용 전극막접합체의 제조 시스템  
**【발명의 영문명칭】** A system for preparing the membrane electrode assembly for fuel cell  
**【출원인】**  
**【명칭】** 주식회사 엘지화학  
**【출원인코드】** 1-2001-013456-3  
**【대리인】**  
**【성명】** 이정희  
**【대리인코드】** 9-1999-000323-7  
**【포괄위임등록번호】** 2003-078105-9  
**【발명자】**  
**【성명의 국문표기】** 박경일  
**【성명의 영문표기】** PARK,KYOUNG IL  
**【주민등록번호】** 740525-1631631  
**【우편번호】** 139-230  
**【주소】** 서울특별시 노원구 하계동 273 장미아파트 602동 509호  
**【국적】** KR  
**【발명자】**  
**【성명의 국문표기】** 문고영  
**【성명의 영문표기】** MOON,GO YOUNG  
**【주민등록번호】** 660807-1548229  
**【우편번호】** 305-751  
**【주소】** 대전광역시 유성구 송강동 송강그린아파트 315동 101호

【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	유황찬
【성명의 영문표기】	Y00,HWANG CHAN
【주민등록번호】	700111-1037314
【우편번호】	305-768
【주소】	대전광역시 유성구 노은동 520-1 열매마을아파트 812동 501호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	이상현
【성명의 영문표기】	LEE,SANG HYUN
【주민등록번호】	720518-1009519
【우편번호】	143-220
【주소】	서울특별시 광진구 중곡동 256-17
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	정하철
【성명의 영문표기】	CHUNG,HA CHULL
【주민등록번호】	690302-1478811
【우편번호】	330-190
【주소】	충청남도 천안시 청수동 엘지아파트 116동 301호
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	송성민
【성명의 영문표기】	SONG,SEONG MIN
【주민등록번호】	740124-1951617
【우편번호】	157-836

【주소】	서울특별시 강서구 등촌2동 365-98 3층 303		
【국적】	KR		
【발명자】			
【성명의 국문표기】	이원호		
【성명의 영문표기】	LEE,WON HO		
【주민등록번호】	550314-1047613		
【우편번호】	302-741		
【주소】	대전광역시 서구 만년동 강변아파트 112동 1005호		
【국적】	KR		
【취지】	특허법 제42조의 규정에 의하여 위와 같이 출원합니다. 대 리인 이정 희 (인)		
【수수료】			
【기본출원료】	0	면	38,000 원
【가산출원료】	9	면	0 원
【우선권주장료】	0	건	0 원
【심사청구료】	0	항	0 원
【합계】	38,000		원

## 【요약서】

### 【요약】

본 발명은 전극막접합체(Membrane electrode assembly, MEA)의 제조 시스템에 관한 것으로, 보다 상세하게는 운반기체 또는 촉매용액의 예열을 위한 예열장치; 예열된 촉매용액 또는 운반기체를 분무하는 분사노즐; 고분자 전해질막 또는 확산층 상의 원하는 지점으로 촉매용액을 코팅하기 위해 분사노즐의 헤드를 이동시키는 이송장치를 포함하는 스프레이 장치로 구성되는 연료전지용 전극막접합체의 제조 시스템은 자동화된 코팅 장비를 제공하여 촉매물질을 고분자막에 균일하게 도포함으로써 양질의 촉매층을 얻어 전지성능의 신뢰성을 향상시킬 뿐만 아니라, 균일한 성능의 MEA를 대량생산할 수 있기 때문에 연료전지의 상용화에 매우 유용하다.

### 【대표도】

도 1

### 【색인어】

연료전지, 전극막접합체, 예열장치

【명세서】

## 【발명의 명칭】

연료전지용 전극막접합체의 제조 시스템{A system for preparing the  
membrane electrode assembly for fuel cell}

### 【도면의 간단한 설명】

<1> 도 1은 본 발명에 따른 MEA 제조용 자동화 시스템의 개략도이다.

② 1: 용액 공급 용기                      2: 프레임(Frame)

<3>                    3: 자동 이송부                    4: 분사노즐

<4>            5: 운반 기체 예열 장치            6: 패턴 프레임

<5> 7: 고분자 전해질 막

### 【발명의 상세한 설명】

### 【발명의 목적】

【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】

<6> 본 발명은 고체고분자 연료전지(Polymer Electrolyte Membrane Fuel Cell, PEMFC) 및 직접메탄올 연료전지(Direct Methanol Fuel Cell, DMFC)의 단위전지에 해당하는 부품인 연료전지용 전극막접합체(Membrane electrode assembly, MEA)의 제조 시스템에 관한 것이다.

<7> 연료전지는 수소와 산소의 산화환원반응 중에 발생하는 전자를 이용함으로써 전력을 생산하는 새로운 발전 방식이다. 연료전지의 단위전지 구조는 고분자 물질

로 구성된 전해질막을 중심으로 양쪽에 음극 및 양극이 코팅되어 있는 구조를 이루고 있는데, 이를 전극막접합체(MEA)라 일컫는다. 음극(anode)에서는 연료인 수소 또는 메탄올이 공급되어 전극촉매 상에서 반응하여 수소이온( $H^+$ )을 발생시키며, 양극(cathode)에서는 고분자 전해질막을 통과한 수소이온과 산소가 결합하여 순수한 물이 생성된다. 이러한 일련의 반응들이 MEA 내에서 일어나게 되며, 상기 MEA는 고체 고분자막의 양쪽에 음극 촉매물질 주로 Pt 또는 Pt/Ru과 양극 촉매물질 주로 Pt를 박막 코팅하여 제조한다.

<8> MEA를 제조하는 방법으로는 촉매물질과 프로톤 전도성 바인더(binder) 물질, 그리고 물 또는 알코올 계열의 용매(solvent)를 혼합하여 반죽(paste)을 제조하고 이를 카본 천(carbon cloth)이나 카본 페이퍼(carbon paper)에 코팅한 다음 프로톤 전도성 전해질막에 열 융착하여 전이하는 방법이 알려져 있다. 이러한 방법은 일종의 간접 코팅법에 해당하는 것으로, 다공질의 카본 천이나 카본 페이퍼에 촉매물질이 코팅될 때 표면에 균일한 두께로 분포되지 않고 기공 속으로 침투해 들어가기 때문에 실제로 MEA 운전시 촉매의 이용율을 감소시켜 성능이 저하된다는 큰 문제점이 있었다. 또한, 이미 형성된 전극층을 다시 프로톤 전도성막에 이차적으로 열 융착해야 하기 때문에 공정이 복잡해질 수 있고 전해질 물질과 촉매층의 계면 형성이 불연속적으로 형성되는 문제점도 있었다.

<9> 또, MEA를 제조하는 방법으로 촉매물질과 프로톤 전도성 바인더물질, 그리고 물 또는 알코올계 용매를 혼합하여 전극 반죽(paste)을 만들고 이를 프로톤 전도성 전해질막의 표면에 스크린 프린팅법 등을 이용하여 직접전사 코팅하는 방식이 알려져



있다. 이러한 방법은 일반적인 인쇄물 제작 공정을 모방한 방법으로, 패턴닝(patterning)이 유리하고 대량 생산에 적합한 방법이지만, 공정 중에 고분자 전해질막에 물이나 알코올계의 용매가 닿으면 부피가 전방향으로 팽창하는 스웰링(swelling) 현상이 발생하여 균일한 표면 코팅층을 얻기 어려울 뿐 아니라 촉매물질의 손실이 많고 용액의 점도를 조절하기 어려운 문제점이 있었다.

<10> 그 외의 방법으로는 촉매물질과 프로톤 전도성 바인더물질, 그리고 다량의 물 또는 알코올계 용매를 혼합하여 스프레이(spray)를 이용하여 기체 확산층(Gas diffusion layer) 또는 고분자 전해질막에 분사하여 촉매층을 형성시키는 습식 방법과 용매를 전혀 사용하지 않고 촉매물질과 프로톤 전도성 바인더물질만을 교반한 후 정전기적 인력(electrostatic attraction)을 이용하여 촉매층을 형성시키는 건식 방법이 사용되고 있다. 이러한 방법들은 기체 확산층 또는 고분자 전해질막의 표면에 박막의 촉매층을 직접적인 방법으로 형성시켜 줌으로써 계면의 연속성을 확보할 수 있고 촉매의 이용율을 향상시킬 수 있는 장점을 가지고 있다.

<11> 그러나, 습식 방법의 경우 일반적으로 다량의 유기용매를 사용하기 때문에 촉매물질과 프로톤 전도성 물질이 균일하게 혼합될 수 있지만 막에 직접 코팅하려고 하는 경우 막이 스웰링되어 균일한 코팅막을 얻기 힘든 문제점이 있고, 건식 방법 또한 막이 부도체이기 때문에 정전기적 인력을 사용하여 코팅하기 어렵고 습식 방법보다 촉매 입자와 프로톤 전도성 바인더를 균일하게 혼합하기 어려운 문제점이 있었다.

<12> 따라서, 상기 종래기술들의 문제점을 극복하면서 촉매물질을 고분자막에 균

일하게 도포함으로써 양질의 촉매층을 얻어 전지성능을 향상시키고 MEA의 대량생산을 가능하게 할 MEA의 신규 제조 시스템의 개발이 시급한 실정이었다.

### 【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<13>           본 발명자들은 습식방법 및 건식방법의 장점을 이용하여 종래기술의 문제점들을 극복한 MEA의 새로운 제조 시스템 개발을 연구하던 중, 유입되는 운반기체 및 촉매용액을 예열하는 장치를 채용한 새로운 코팅 시스템을 도입하고 이를 자동화함으로써 본 발명을 완성하게 되었다.

<14>           따라서, 본 발명은 습식방법 및 건식방법의 장점을 사용하여 전극 촉매층의 균일도를 향상시킬 뿐만 아니라, 고분자 전해질막의 스웰링(swelling) 현상을 최소화 할 수 있는 MEA의 제조 시스템을 제공하는데 그 목적이 있다.

### 【발명의 구성】

<15>           상기 목적을 달성하기 위하여, 본 발명은 운반기체 또는 촉매용액의 예열을 위한 예열장치; 예열된 촉매용액 또는 운반기체를 분무하는 분사노즐; 및 고분자 전해질막 또는 확산층 상의 원하는 지점으로 촉매용액을 코팅시키기 위해 분사노즐의 헤드를 이동시키는 이송장치를 포함하는 스프레이 장치로 구성되는 연료전지용 전극막 집합체(Membrane electrode assembly, MEA)의 제조 시스템을 제공한다.

<16>           이하, 본 발명에 따른 촉매용액 및 운반기체를 예열하는 방식을 채용한 연료전지용 전극막집합체의 제조 시스템의 관한 전체 개략도를 나타내는 도 1에 근거하여 본 발명을 상세하게 설명한다.

<17> 도 1에 의하면, 촉매용액은 공급용기(1)를 통해 정량적으로 분사노즐(4)에 공급되며, 자동 이송부(3)는 입력한 프로그램에 따라 x, y, z축 방향으로 좌표에 따라 움직이면서 분사노즐(4) 헤드를 통해 원하는 지점에 코팅을 수행하게 된다.

<18> 이때, 분사노즐로 유입되는 운반기체 및 촉매용액은 예열장치(5)를 통해 일정한 온도로 가열되는데, 아르곤(Ar), 헬륨(He), 질소(N<sub>2</sub>), 공기 등의 비활성 기체가 사용될 수 있으며, 바람직한 온도는 150-200℃이다. 보다 원활한 코팅을 수행하기 위해서 공급용기 및 운반 라인을 예열할 수도 있으며, 이때 바람직한 온도는 60~80℃이다.

<19> 분사노즐(4)을 통해 배출된 촉매용액은 패턴 프레임(6) 사이에 있는 고분자 전해질막 또는 확산층 위에 코팅되게 된다. 고분자 전해질막을 사용할 경우 코팅 용액과의 접촉을 원활하게 하기 위하여 사용 전 전처리를 수행하는데, 물 또는 이소프로필 알코올(IPA), 메탄올, 에탄올과 같은 유기 용매, 또는 그 혼합물에 일정 시간을 담근 후 사용하며, 바람직하게는 물에 1 내지 10분 정도 담가 놓은 후 사용한다.

<20> 본 발명은 운반기체와 촉매용액이 분사노즐에 유입되기 전에 충분히 예열되기 때문에 촉매용액이 분사노즐에서 배출되어 고분자 전해질막에 코팅될 때까지 대부분의 용매가 증발되어 용매에 의한 고분자 전해질막의 스웰링(swelling) 현상을 최소한으로 억제할 수 있다.

<21> 그러나, 고분자 전해질막은 극히 소량의 용매로도 일부분이 스웰링되어 균일

한 코팅막 형성을 어렵게 할 수 있기 때문에 이를 보완하기 위하여 스프레이 건조 방식을 이용할 수 있다.

<22> 스프레이 건조 방식이 합은 기존의 장치 외에 추가로 건조기를 도입하는 것이 아니라, 촉매용액으로 양쪽 면을 코팅하기 위해 설치된 2개의 분사노즐 중 어느 한쪽 면을 코팅할 때 사용되지 않은 나머지 하나의 분사노즐을 건조에 이용하는 방법이다. 즉, 음극 또는 양극 중 어느 한쪽 면을 촉매용액으로 코팅하는 동안 반대쪽의 분사노즐에 예열된 운반기체를 도입하여 고분자 전해질막의 스웰링을 억제하는 것으로, 이 방법을 사용하면 스웰링이 일어나는 구간과 일치하게 예열된 기체가 유입되므로 추가로 건조기를 도입하는 것보다 효과적이다.

<23> 따라서, 본 발명에 따른 신규 MEA의 제조 시스템은 습식 및 건식 코팅 공정에서 문제가 될 수 있는 부분들을 개선하여 습-건식 혼용 방법을 도출한 것으로, 일련의 과정들이 컨트롤 패널(control panel)에서 모두 자동으로 조작되기 때문에 쉽고 간편하게 균일한 성능을 가진 MEA를 대량 생산할 수 있다.

### **【발명의 효과】**

<24> 상기 살펴본 바와 같이, 본 발명은 기존에 수작업, 소량으로 진행되었던 MEA 제조 방법을 새로운 개념과 자동화 장비를 도입하여 종래의 문제점을 개선하였으며, MEA 제조 단계에서 자동화된 코팅 장비를 제공하여 촉매물질을 고분자막에 균일하게 도포함으로써 양질의 촉매층을 얻어 전지 성능의 신뢰성을 향상시킴과 동시에 대면적 MEA의 대량 생산을 가능하게 할 수 있기 때문에 연료전지 상용화에 크게 기여할 수

있다.

## 【특허청구범위】

### 【청구항 1】

운반기체 또는 촉매용액의 예열을 위한 예열장치; 예열된 촉매용액 또는 운반기체를 분무하는 분사노즐; 및 고분자 전해질막 또는 확산층 상의 원하는 지점으로 촉매용액을 코팅시키기 위해 분사노즐의 헤드를 이동시키는 이송장치를 포함하는 스프레이 장치로 구성되는 연료전지용 전극막 접합체의 제조 시스템.

### 【청구항 2】

제 1항에 있어서, 상기 운반기체는 예열장치를 통하여 150-200℃의 온도로 가열되는 것을 특징으로 하는 제조 시스템

### 【청구항 3】

제 1항에 있어서, 상기 운반기체는 아르곤(Ar), 헬륨(He), 질소(N<sub>2</sub>) 또는 공기인 것을 특징으로 하는 제조 시스템.

### 【청구항 4】

제 1항에 있어서, 상기 시스템은 2개의 분사노즐 중 어느 한쪽 면을 코팅할 때 사용되지 않은 나머지 하나의 분사노즐에 예열된 운반기체를 도입하여 건조하는 것을 특징으로 하는 제조 시스템.

【도면】

【도 1】

